卒業研究

２次元蛍光放射線測定器の開発

宇宙粒子研究室

学籍番号　１０９６１０５６

美野　翔太

目次

１．はじめに

１．１動機

一昨年、福島原発の事故により環境に多くの放射線が放出された報告を受け、自分で放射線を測定することができないかと考え、卒業研究では、このようなことができる測定器の開発について研究しました。

１．２

放射線（radiation）とは、放射性元素の崩壊に伴い放出される粒子線あるいは電磁波のこと。主にアルファ線、ベータ線、ガンマ線の 3 種を指す。また、それらと同程度のエネルギーを持つ粒子線や宇宙線を含めることもある。広義には、様々な粒子線や電磁波の総称である。電離作用を持つ電離放射線について考えることが多く、励起なども起こり、これらに基づいて、物理作用、生理作用のほか、化学作用も現れる。
日本の法律「原子力基本法」の放射線の定義は「電磁波又は粒子線のうち、直接又は間接に空気を電離する能力をもつもので、政令で定めるもの（原子力基本法第 3 条第 5 号）」を言い、2012 年現在政令で定められているものは「一.アルファ線、重陽子線、陽子線その他の重荷電粒子線及びベータ線二.中性子線三.ガンマ線及び特性エックス線（軌道電子捕獲に伴って発生する特性エックス線に限る。）四.1 メガ電子ボルト以上のエネルギ一を有する電子線及びエックス線(以上同法第 4 条による)」である。

２．目的

セシウム１３７からの放射線（β線）による大気蛍光を冷却ＣＣＤカメラを使い撮像し、２次元で放射線源の位置を求めること。

３．原理

３．１　原理

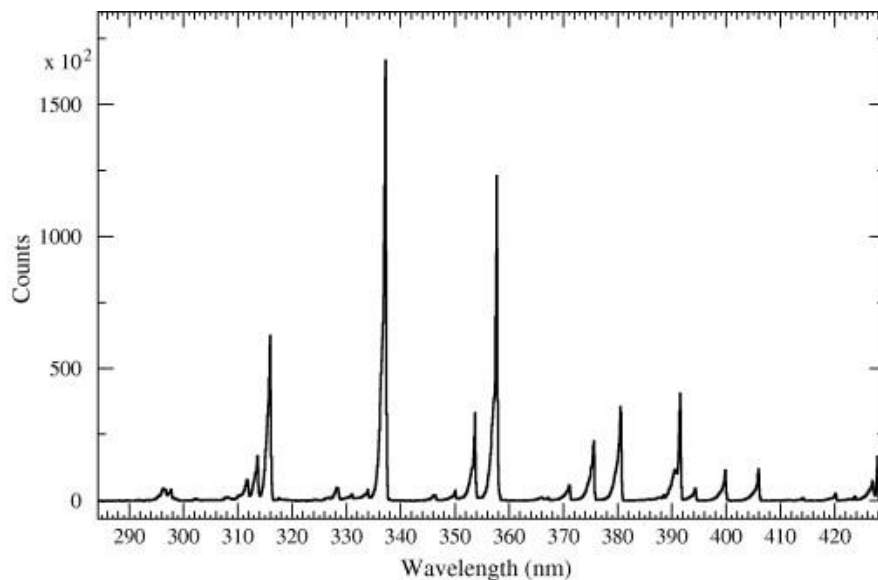
セシウム137から放射されるβ線が大気に入射すると大気中で励起、イオン化が起きる。この現象により大気中の窒素が蛍光する。それを、冷却ＣＣＤカメラで撮像することにより、２次元で放射線源の位置を確かめる。

３．２　セシウム１３７について

放射性セシウムには、セシウム１３４とセシウム１３７がある。
下表に示すように、半減期や放出されるガンマ線エネルギー等核特性が異なる。例えば、セシウム１３７の半減期は約３０年で、セシウム１３４の約2.1年と比較して長い。また１崩壊当たり（１Ｂｑ当たり）の線量は、放出されるガンマ線のエネルギー及びその割合に起因してセシウム１３４の方が高い。

セシウム１３４とセシウム１３７の特性

	^{134}Cs	^{137}Cs	
半減期（年）	2.065	30.167	
核分裂収率	^{133}Cs と ^{134}Cs とを合わせて 6.7896%	6.2 %	
崩壊	$^{134}Cs \xrightarrow{\beta} {}^{134}Ba$	$^{137}Cs \xrightarrow{\beta} {}^{137m}Ba \xrightarrow{IT}$	β：β壊変 IT:核異性体転移
主たるガンマ線のエネルギー	563 keV, 569 keV, 605 keV, 796 keV, 802 keV, 1365 keV	662 keV (^{137m}Ba)	^{134}Csは^{137}Csよりも高いエネルギーのガンマ線を放出する。
1崩壊当たりの放出割合	8.4% (563 keV) 15.4% (569 keV) 97.6% (605 keV) 85.5% (796 keV) 8.7% (802 keV) 3.0% (1365 keV)	85.1 % (662keV)	^{134}Csは1回の崩壊で２本以上のガンマ線を放出するため､放出割合の合計値は100%を超える。
1cm 線量当量線量換算係数	0.249	0.0927	単位：(μSv/h)/(MBq/m^2)
土壌沈着あたりの周辺線量率	5.4E-6	2.1E-6	単位：(mSv/h)/(kBq/m^2) (IAEA-TECDOC-1162 より)

３．３　放射線による空気からの蛍光

337nm の波長からの蛍光の光子数が測定されていて、～5.5photon/MeV となっています。これは、2nm の線幅を持つ光学フィルターで選別可能である。

３．４　β線について

原子核（中性子）がβ崩壊する際に高速で放出される電子、または陽電子のことをベータ粒子という。β-崩壊で発生するベータ粒子は負の電荷を持った電子、β+崩壊で発生するベータ粒子は正の電荷を持った陽電子である。なお、熱電子、光電効果により放出された電子など、中性子のβ崩壊以外の原因で放出された電子は、ベータ粒子とは呼ばれない。また、加速器によって加速された高速な電子は電子線と呼ばれる。
粒子としての性質は、電子または陽電子と全く同じフェルミ粒子であり、スピンや質量についてもそれに従う。β+崩壊で発生した陽電子と遮蔽物の電子が対消滅した際には消滅放射線と呼ばれる 0.511MeV の光子が 2 個発生する。

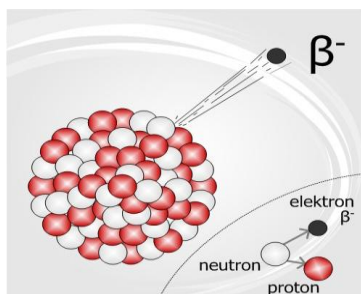
原子核がβ-崩壊してベータ粒子（電子）を放出している様子

３．５　シンチレックス（帝人）

表 1：放射線感受性プラスチックの性能

名称	シンチレックス (Scintirex)	プラスチックシンチレータ（BC-408）	高純度 PET 樹脂
ベース素材	ポリエステル系化合物	$(C_9H_{10})_n$	$(C_{10}H_8O_4)_n$
密度	1.33 g/cm^3	1.03 g/cm^3	1.33 g/cm^3
屈折率	1.65	1.58	1.64
蛍光量	~10 500 photon/MeV	10 000 photon/MeV	~2 200 photon/MeV
最大蛍光波長	425 nm	425 nm	380 nm

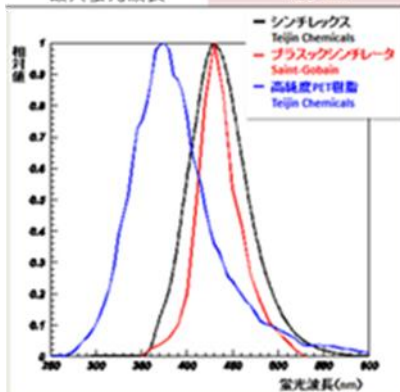



図 3：蛍光波長の評価

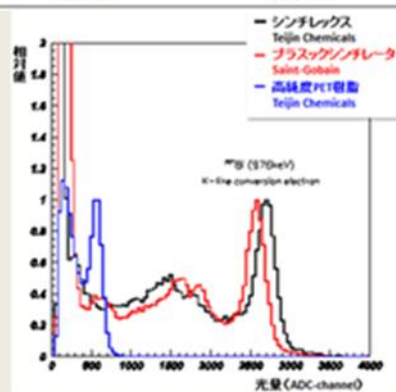



図 4：蛍光量の測定

シンチレックスとは、シンチレータ（蛍光物質）の一種で、放射線があたると蛍光を出す物質のことです。放射性物質をシンチレータに当てることで、シンチレータは放射線のエネルギーを吸収する。それにより、内部で励起あるいは、電離が起き、この吸収したエネルギーの一部を可視光や紫外線として発する。

３．６　蛍光の原理

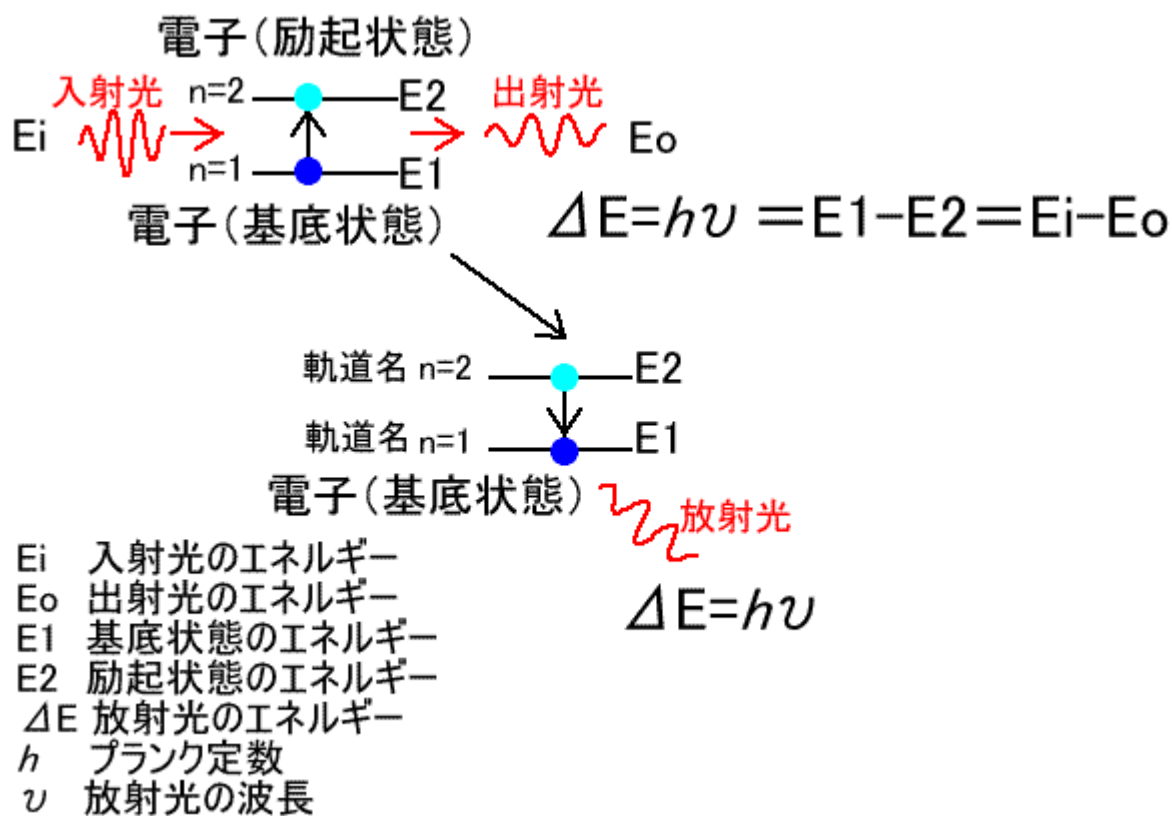
励起（Excitation）は、光、熱、電場、磁場などの影響によって引き起こされます。電子や陽子、中性子、分子、イオンの入射、衝突などによって励起されることもあります。
入射光により、基底状態（ground state）にあった電子はΔE のエネルギーを貰って励起状態になります。そのとき入射光からΔE のエネルギーが減少し、そのエネルギーに相当する分だけ出射光の波長が長くなります。励起状態にある電子はあるとき基底状態に戻るとき、ΔE のエネルギーに相当する波長の放射光を出します。

電子（励起状態）
入射光　n=2　E2　出射光
Ei　Eo
n=1　E1
電子（基底状態）

$$\Delta E = h\upsilon = E1 - E2 = Ei - Eo$$

軌道名 n=2　E2
軌道名 n=1　E1
電子（基底状態）　放射光

$$\Delta E = h\upsilon$$

Ei　入射光のエネルギー
Eo　出射光のエネルギー
E1　基底状態のエネルギー
E2　励起状態のエネルギー
ΔE 放射光のエネルギー
h　プランク定数
υ　放射光の波長

電子がある軌道から別の軌道へ飛び移ること、あるいは価電子帯の頂上から伝導帯の底へ電子が飛び移ることを電子遷移といいます。
一般に、物質がエネルギーを吸収（あるいは放出）し、状態が変化することも遷移といます。

基底状態

　基底状態とは、原子の中の電子が取り得る状態（原子の電子配列）の内で最低のエネルギー状態をいいます。それ以外の状態が励起状態といいます。例えば水素原子のスペクトルでは内側の第一の軌道に電子が 1 個だけ存在している時が基底状態で、その他の軌道にいるときが励起状態です。ただし、電子の軌道は便宜的なもので、電子の存在確率が、中心核に近いところに集中していますが、励起状態 に なるとその確率は 随分中心核から離れたところに分布するようになります。 つまり励起状態になると， 水素原子は 随分と膨らんできます。

準安定状態

原子が他の粒子との衝突等によってエネルギーを獲得した場合、原子が持っている電子（軌道電子）が高いエネルギー状態（元の軌道より外側の軌道）に移動させられた状態をいい、その状態を準安定状態といい、この過程を励起といいます。
準安定状態から、より低い状態（現在の軌道よりも内側の軌道）に移動するときにはその軌道間のエネルギー差に応じた波長の光を放出（詳細は水素原子のスペクトルの例を参照して下さい。）します。励起は粒子の衝突だけではなく、非常に強い放射（電磁波、光、光子）の吸収によっても発生します。

電離

電離は原子に他の粒子（電磁波を含む）が衝突して、原子の持っている電子が弾き飛ばされて、軌道電子を奪い取られた状態で、原子核が持っている陽子の数に変化が無いので、原子は電子を失った分だけ電気的に正の電荷を持ったように見えます。この状態を正イオンといい、電気を運ぶ役割をしますが、原子核は電子に対して非常に重いことから移動速度が遅く、電流（電荷の移動）にはほとんど寄与しません。

溶解
イオンには溶液中で分子を構成する原子相互間の結合が解ける現象（溶解）があり、このときに電子結合を担っていた電子がついていった分子ほうが陰イオンで電子が離れていった方の分子が陽イオンです。この場合には主にイオンが電流の担い手になります。
イオンは電子との結合または陰イオンと陽イオンとの結合によって元の中性の分子に戻ります。このとき両者の持っていたエネルギーは元の安定な状態と比較して大きく、その差は電磁波として放出されます。

誘導放射(stimulated emission)
物体に電磁波が当たり，単にその電磁波を吸収するだけでなく，当たった電磁波と同じ波長の電磁波が放出されることです。これに対して，電磁波が当たらなくても起きる放射を 自然放射(sponteneous emission)と呼びます。

４．　準備実験

４．１　測定

冷却ＣＣＤカメラの 400nm 以下の量子効率を求める。
表１を見てわかるように、実験で使用する冷却ＣＣＤカメラは、400nm 以下の量子効率は得られていません。
また本実験では、大気蛍光を利用するので、400nm 以下での撮影が必要となるので、これらの効率を実験より求めます。（表２参照）

表１．冷却ＣＣＤカメラ（ＳＴ－２０００XM）の量子効率
赤線の方が、実験装置の量子効率になります。

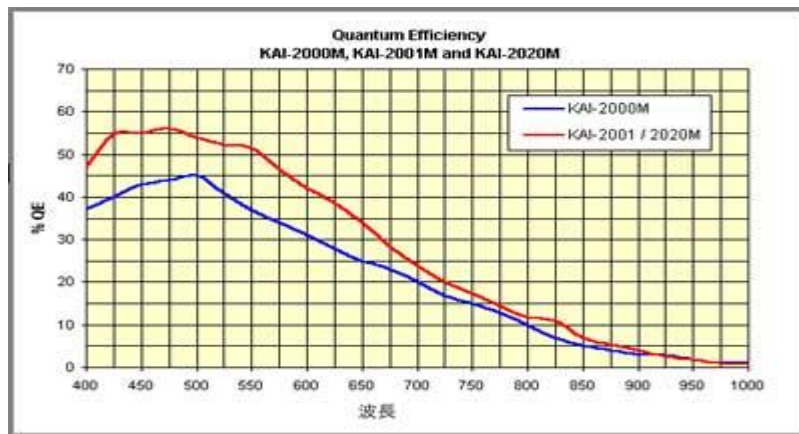
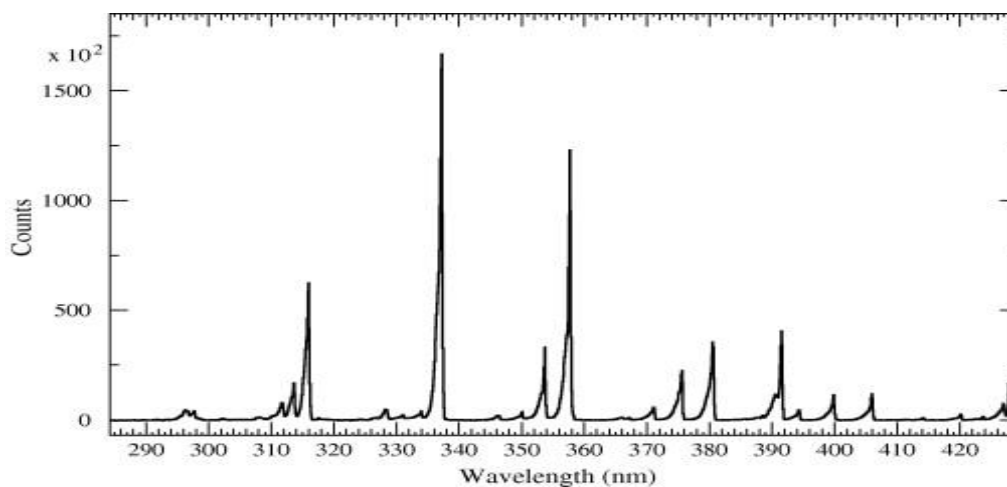



表２．放射線による空気からの蛍光

４．２　使用器具

ハロゲンランプ

バルブ内にガスを充填し、内部のフィラメントを発熱、発光させる仕組みは白熱電球と同様の仕組みです。封入ガスにハロゲン系のガスを入れることで、フィラメントの蒸発を抑制し、シリカ電球等の白熱電球よりも高温にさせることで光束を大きく確保しています。
バルブ温度が白熱電球よりも上昇するため、高熱に耐えられるようにバルブに石英ガラスを使用しています。石英ガラスは耐熱性が良く、900℃から 1,200℃という高温にも耐えられる素材ですので、フィラメントの発熱を高めて光束を上昇させることができ、かつ器具を小型しても問題ないという特徴があります。
発光効率が向上し、寿命末期まで明るさがほとんど変化しないことも特長です。

分光器

広範囲の波長の光を空間的に分散させ、それをスリットなどで狭い範囲の波長のみを取り出す分光器である。初期のこの型の分光器はスリットを通った光をレンズやミラーにより平行光にしたのち、プリズムを通すことで光を分散させた。プリズムを通るときに光は波長により異なった角度で屈折するので、光を分散することができる。最近では、回折格子を用い、これを回転させてスリットの位置に到達する光の波長を変化させる。分散された光をスリットなどで区切り出てきた光の強度を検出器によって検出する。

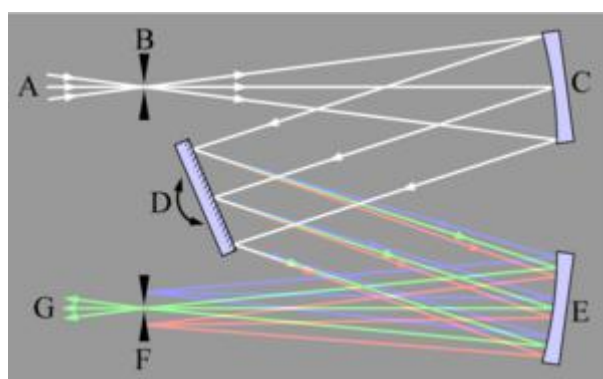



図.分光器の構造

曲面鏡 C によって回折格子 D に光を照射し、曲面鏡 E とスリット F によって目的波長の光を取り出す

冷却ＣＣＤカメラ（ＳＴ－２０００XM）

CCD カメラは、写真フィルム撮影と比較し高感度、高精度、高速ダウンロードと表示、容易な画像合成などの優れた特徴を持つ。また、CCD の特徴として露出が長くなるほど、温度が高くなり、ダークノイズ(暗電流によるノイズ)が発生し、撮像対象がノイズに埋もれてしまうが、CCD を冷却することで暗電流を減少させせることができるため、一般的に撮影が困難とされる小さくて暗く淡い天体の撮影に能力を発揮する。CCD の温度を 8-10℃下げると、暗電流を約半分に抑えることができる。ただし，冷却してもノイズが完全になくなるわけではなく、読み出しノイズと呼ばれる電荷転送中や電荷信号転送中の増幅、電子回路で発生した電気的ノイズは残ってしまう。CCD は、画素(ピクセル)と呼ばれる小さな受光面の集合からなり、一列に並べた一次元 CCD と平面に並べた二次元 CCD とがある。一次元 CCD はファックスやイメージスキャナなどに用いられ、二次元 CCD はデジタルカメラやビデオカメラに使用される。一般に、CCD チップは受光面に入射した光子を電子に変換する。光子が特定の材料に当たると自由電子が放出され、光電子が発生するという物理的な光電効果によるものである。CCD はこのときの変換効率が高く、入射した光子の数に比例する電子を生成することができる。生成された電子は各画素内に蓄積され、規定の信号に従って転送エリアに転送され、先頭から規定の信号により電子を電圧に変換し、内臓のアンプで増幅した後信号を出力する。出力された信号は外部でデジタル変換などいくつかの処理を経て、コンピュータで表示･保存できるように加工される。このように、CCD カメラは、電荷生成･電荷蓄積･電荷転送･電荷検出というプロセスで二次元画像を取得できる。

ＣＣＤの構造

５．　方法

１．１　装置図

暗箱

分光器

ハロゲンランプ

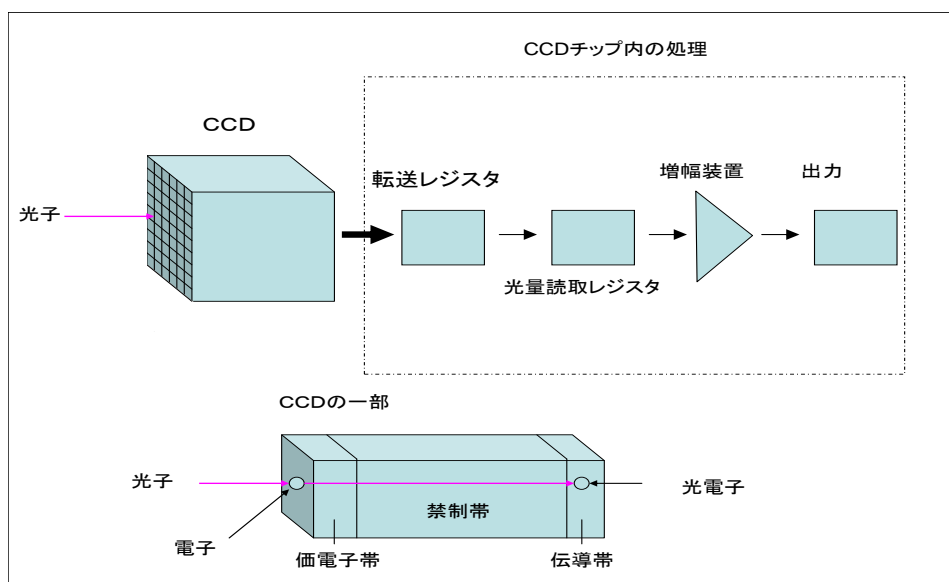
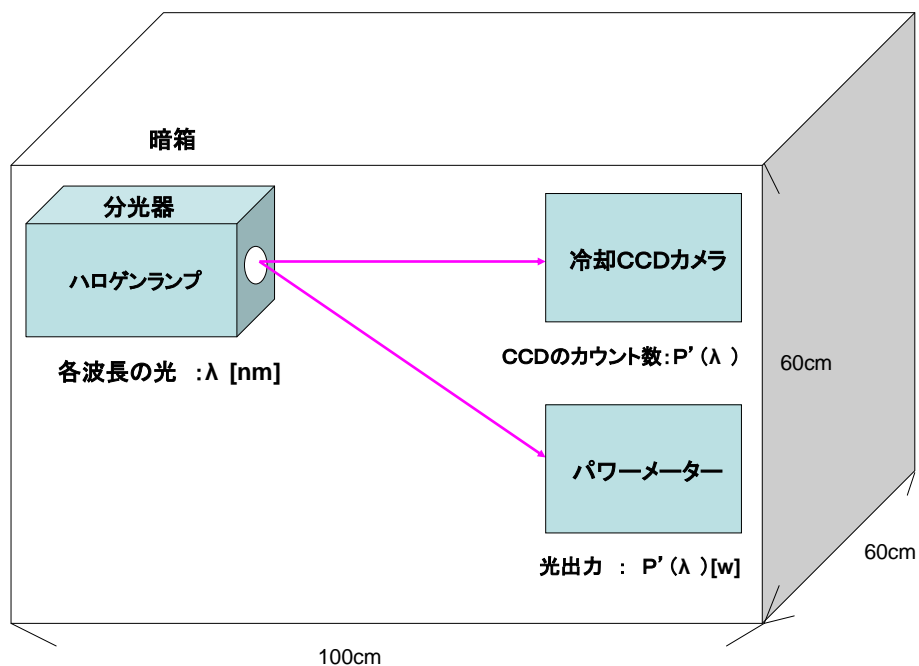
冷却CCDカメラ

各波長の光　:λ [nm]

CCDのカウント数:P’(λ)

60cm

パワーメーター

光出力　:　P’(λ)[w]

60cm

100cm

縦 60[cm]、横 100[cm]、高さ 60[cm]の暗箱の中に、分光器を設置し、冷却ＣＣＤ、カメラ、パワーメーターを測定する順に入れ替えます。

１．２測定条件

分光器と冷却ＣＣＤカメラ、パワーメーターの距離は 4[cm]で設定する。
ハロゲンランプの電源 10.0[V]で設定する。
分光器のマイクロメーター
左(光量)：0.15[mm]　右(照射時に映る光の大きさ)：9.5[mm]
冷却 CCD カメラの露出時間：0.01[s]

１．３　測定

測定１．分光器を使用し、ハロゲンランプのある点の波長の光を取り出し、パワーメーターに当てる。そこから、ハロゲンランプを on にしてからその光の強度が一定になる時間を測定する。

測定２．冷却ＣＣＤカメラの電源 on にしてからの時間とＣＣＤの backgrand のカウント数の関係性を調べる。

今後の測定は、１．２の結果を元に実験を進めていく。

測定３．パワーメーターを使い、ハロゲンランプの 300～500nm（10nm 毎）,550nm,600nm までの波長の光の強度 P を測定する。

測定４．冷却ＣＣＤカメラを使い、ＣＣＤのカウント数と backgrand の測定を各波長 300～500nm（10nm 毎）,550nm,600nm まで以下のような順番に行う。

測定前のＣＣＤの backgrand カウント数の測定

↓

300nm のＣＣＤカウント数の測定

↓

backgrand カウント数の測定

↓

310nm のＣＣＤカウント数の測定

↓

backgrand カウント数の測定

↓

320nm のＣＣＤカウント数の測定

↓

.

.

.

600nm のＣＣＤカウント数の測定

↓

測定後のＣＣＤの backgrand カウント数の測定

↓

測定終了

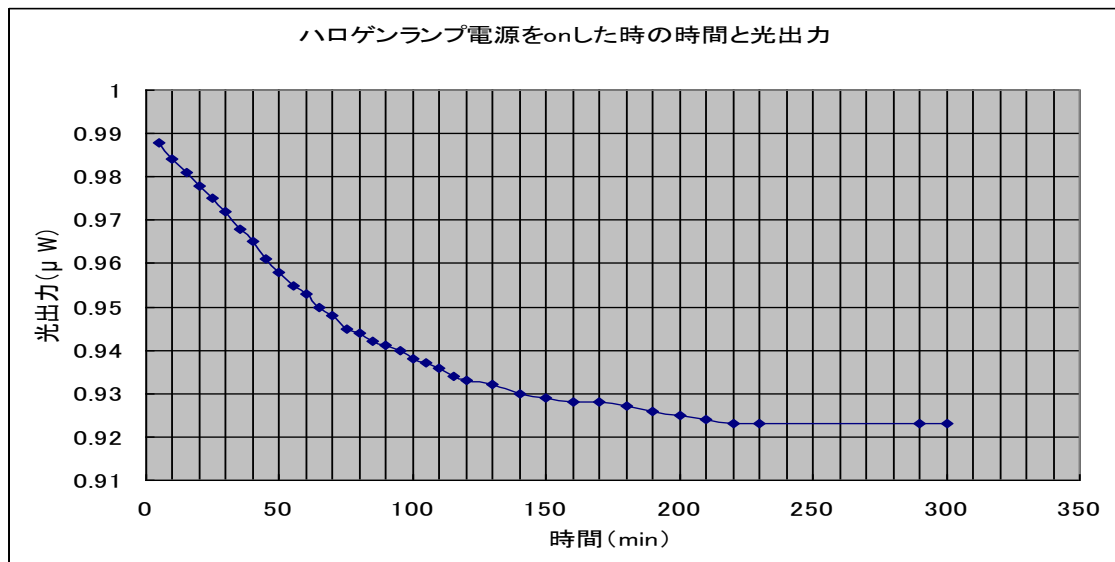
６．結果

１．測定結果

測定１．時間－光出力

ハロゲンランプ電源をonした時の時間と光出力

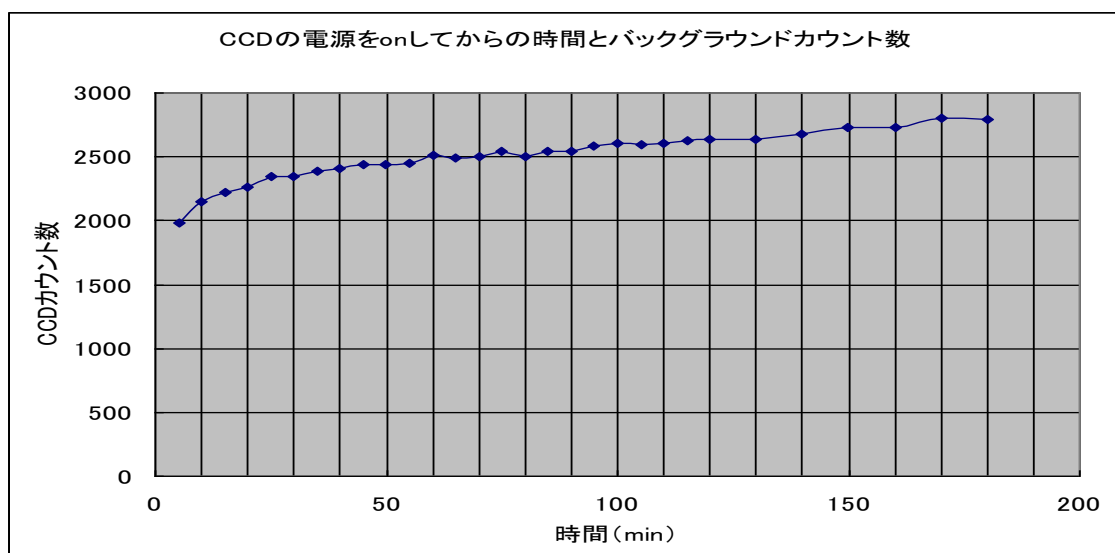
光出力(μW)

時間（min）

実験で使用したハロゲンランプは２３０分を超えると光出力が一定になることがわかった。

測定２．時間－ＣＣＤカウント数

CCDの電源をonしてからの時間とバックグラウンドカウント数

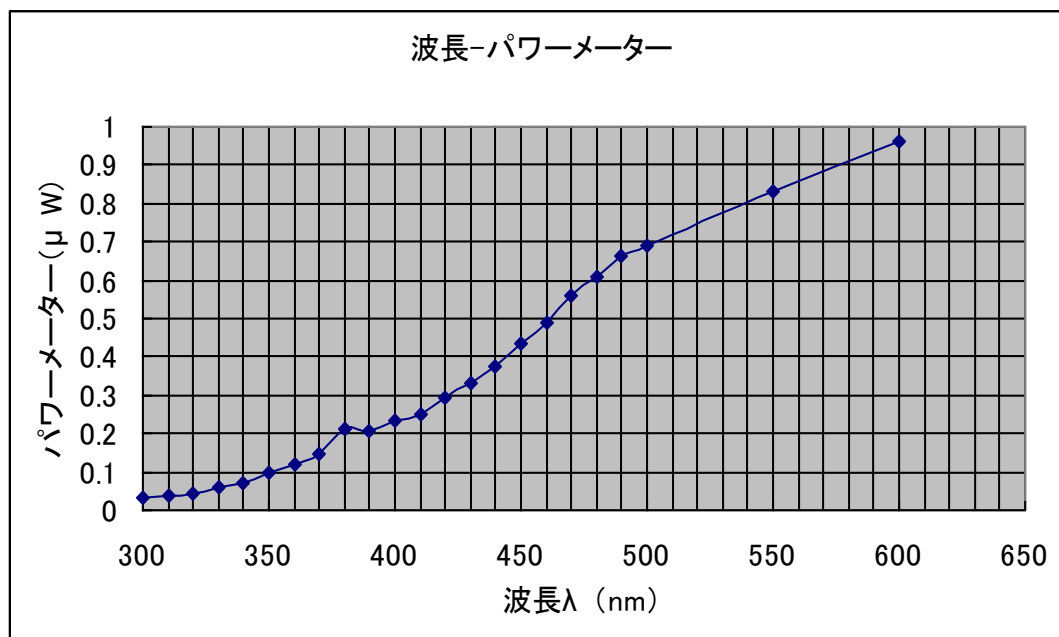
CCDカウント数

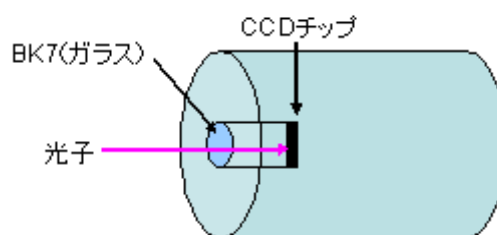
時間（min）

時間と CCD カウント数は、ほぼ時間に比例してあがっていることがわかった。

ここからは、測定１．２の結果を元に測定を実行した。

測定３.１ ハロゲンランプの光をパワーメーターに当て、測定したグラフ

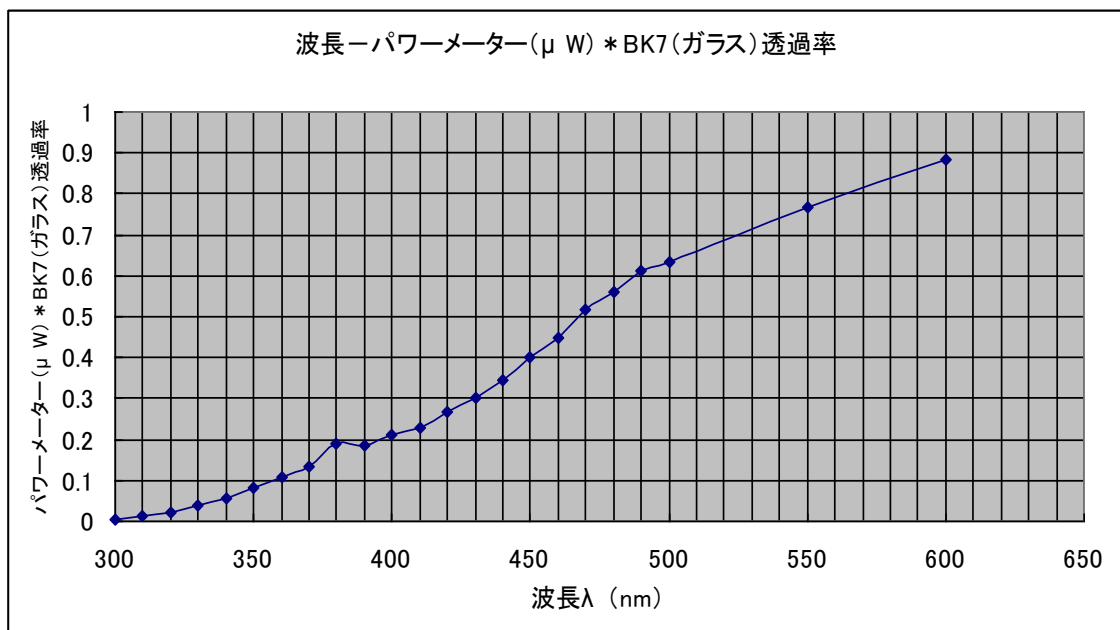
波長-パワーメーター

（グラフ：縦軸 パワーメーター(μW) 0～1、横軸 波長λ（nm） 300～650）

実験では、CCD カメラの中にある CCD チップに光を当てるのですが、CCD チップの受光面に光が届くまでに BK7 という特殊なガラスがあり、これにより、各波長での透過率が変わり光出力が変化します。

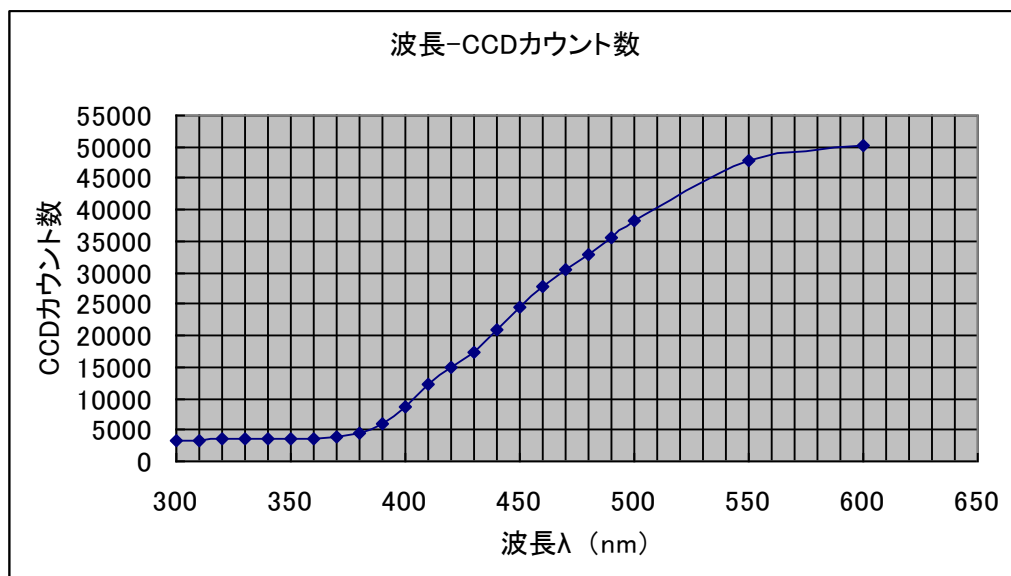
装置図

BK7(ガラス)
CCDチップ
光子

このガラスの透過率の特徴としては、350nm 以下の波長から波長が短くなるにつれ、効率が低くなるというものです。それを考慮したものが、次のグラフになります。

測定３．２　測定３．１の結果に BK7(ガラス)の透過率を掛けたものです。

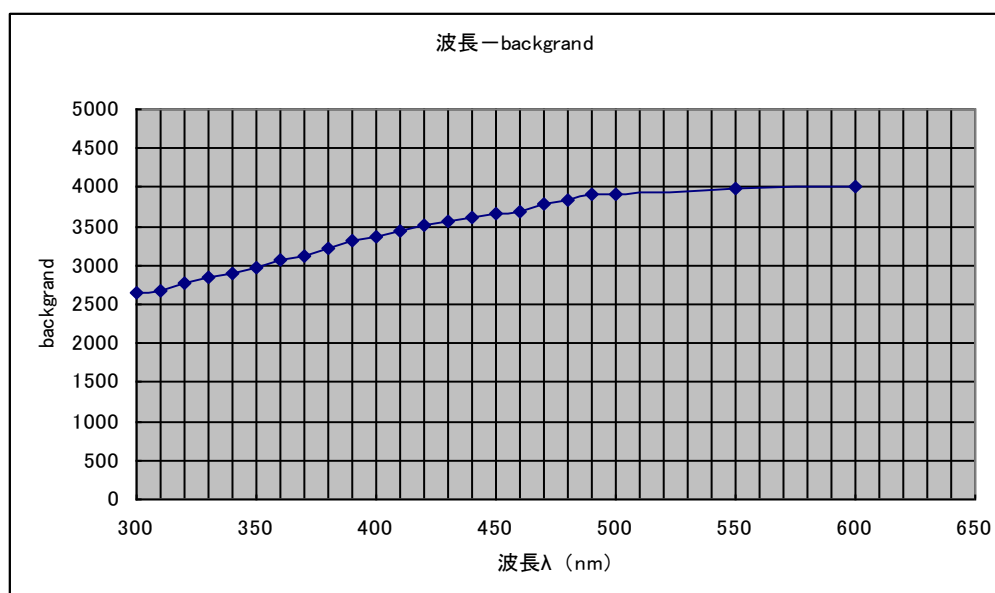
波長－パワーメーター(μ W)＊BK7(ガラス)透過率

各波長で CCD カメラに当たる光の強度を示していています。
ここから出てくるパワーメーターの値は P(λ)とします。

測定４．１ハロゲンランプの光を CCD カメラに当て、測定したグラフ

（測定３．２で得られた、光の強度によって得られた CCD のカウント数）

測定前後の CCD カメラのバックグランドのカウント数

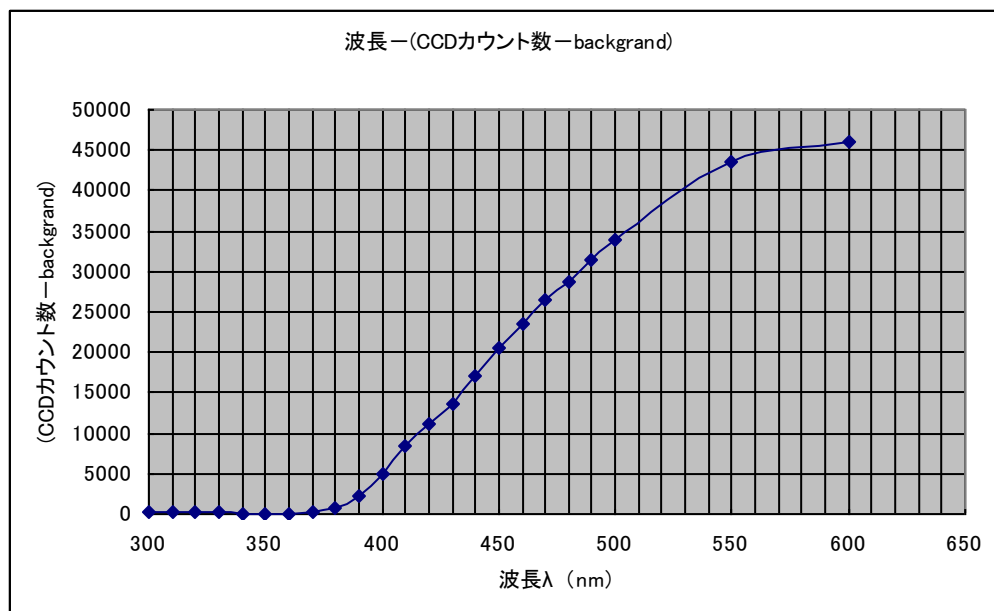
測定前：3157.21　測定後：4364.41

測定４．２　CCD のカウント数を測定毎に発生する backgrand のカウント数

（この測定値は、同時に行うことで backgrand が多くなるので、別の測定より求めたものです。）

測定４．２の結果から測定毎に波長間で発生する backgrand の数は、時間に比例していることがわかった。この結果より、測定４．１から比例して増加する backgrand を各波長毎で引くと、実際の CCD のカウント数が得られる。それが、次のグラフです。

波長－(CCDカウント数－backgrand)

(CCDカウント数－backgrand)

波長λ（nm）

ここでの、CCD のカウント数の結果を今後 P'(λ)とします。

２．計算

以上の測定結果より、冷却 CCD の量子効率 QE を求めます。
計算方法について

N:光子数[個/s]　P(λ):パワーメーター[W]　λ:波長[m]
h:プランク定数＝6.626＊10^(－34)[J/s]　c:光速＝2.99792458＊10^(8)[m/s]
CCD の量子効率 QE（%）とすると

パワーメーターに入る１秒当たりの光子数 N(λ)は

$N(\lambda)=P(\lambda)\cdot\lambda/hc$…①

CCD での１秒当たりの光子数 N'(λ)は

N’(λ)/N(λ)=k(定数)…②

CCD での１秒当たりの光電子数 n は

n=N’(λ)＊QE（λ）…③

③式に比例する量が CCD で測定した値 CCD のカウント数 P’(λ)になるので

P’(λ)=k’＊N’(λ)＊QE(λ)…④
になります。k’は比例定数になります。

②式より、N’(λ)は
N’(λ)＝k＊N(λ)になり④式に代入すると
P’(λ)＝k’＊(k＊N(λ))＊QE(λ)

N(λ)も①式より
P’(λ)＝k’＊k(P(λ)＊λ/hc)＊QE(λ)…⑤
となります。

⑤式を QE＝に式変形すると
QE(λ)＝(hc/k＊k’)＊(P’(λ)/P(λ))＊(1/λ)…⑥
になります。

ここで、k＊k’=K(定数より)とおくと
QE(λ)＝(hc/K)＊(P’(λ)/P(λ))＊(1/λ)…⑦
にできます。

⑦の式では、400nm 以上の波長からは、K 以外の値は、理論値、測定結果より求まっているので K について求めると
K＝(hc/QE(λ))＊(P’(λ)/P(λ))＊(1/λ)…⑧
より K の値は求めることができる。

そして、400nm 以上での K の平均値を求め、この K 値を⑦の式に代入することで、全体の量子効率 QE(λ)を求めることができます。

３．　計算結果

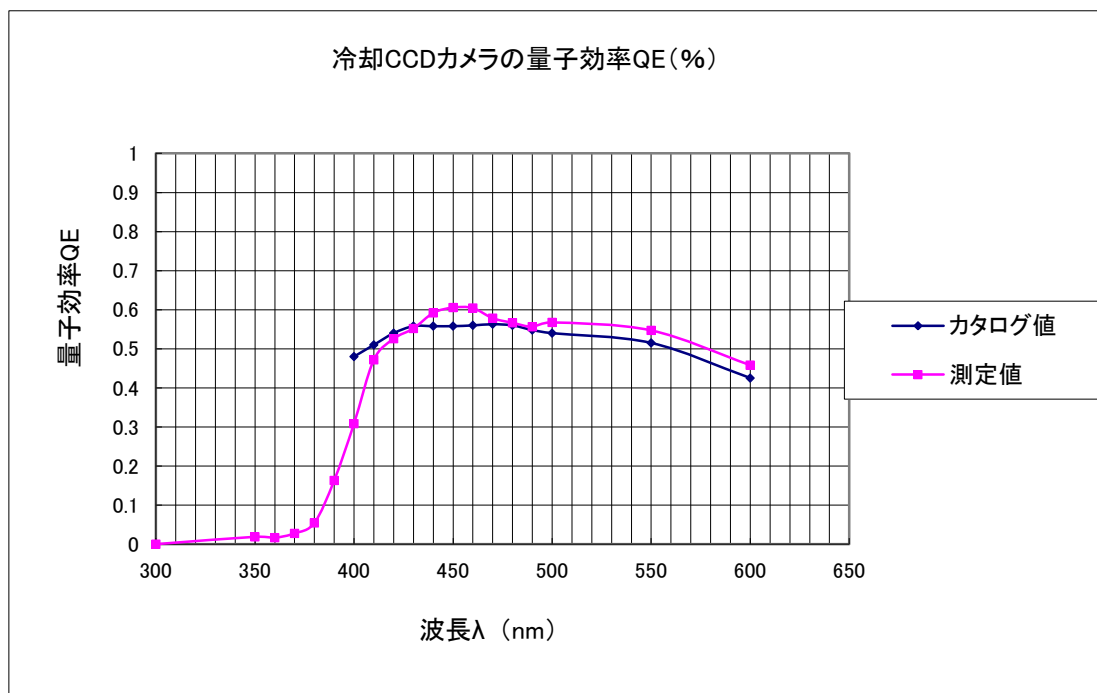
青線が測定値から求めた CCD の量子効率で赤線が CCD の量子効率のカタログ値です。

冷却CCDカメラの量子効率QE（%）

量子効率QE

波長λ（nm）

カタログ値

測定値

CCD の量子効率が 400nm 以下から一気に効率が下がっていることがわかります。

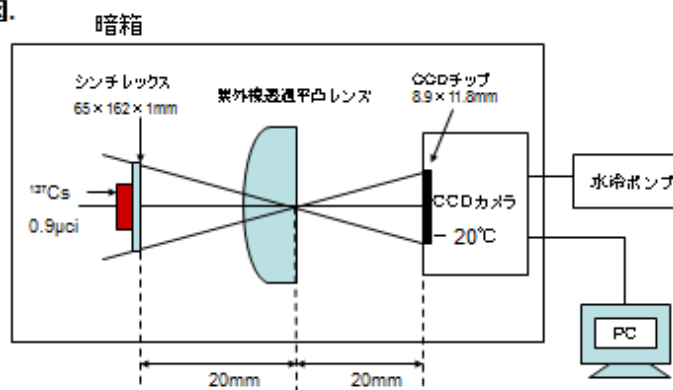
実験では､冷却 CCD でセシウム 137 の大気蛍光を測定するのですが､ここでの、大気蛍光は 300～400nm であることから、測定が困難であるとわかりました。

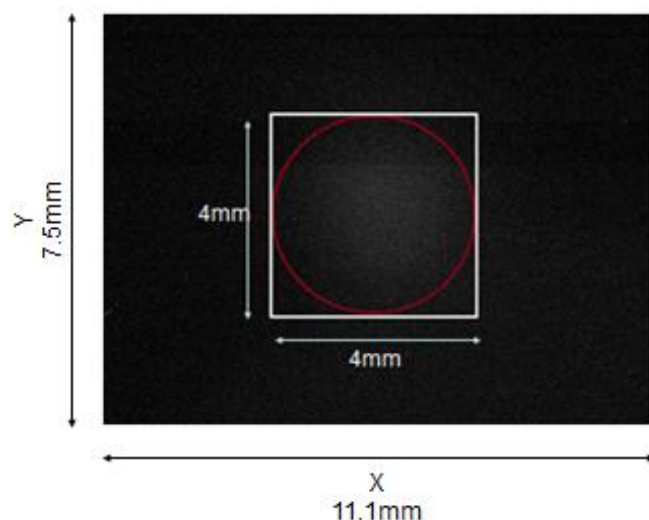
なので、ここからは、セシウム 137 についての測定を、400nm 以上での測定を考えシンチレータを利用して行うことにしました。

また、350nm 以下の波長で急に量子効率 QE が上がっているのは、ハロゲンランプの光量が 350nm 以下であまり変化していないことが原因と考えられる。

７．実験方法

１．１装置図

装置図.

１． ２測定条件

冷却 CCD カメラのチップの温度を－20℃で、シンチレータに直接、放射線源を当て撮影する。CCD チップのサイズは 8.9mm×11.8mm である。セシウムは

X 軸が画像の横の長さ（11.1mm）、Y 軸が画像の縦の長さ（7.5mm）である。セシウムのサイズは、図で表しているように、半径 2mm の円形の物を使用した。

１． ３発光原理

セシウム 137 をシンチレータに当てることで、シンチレータは放射線のエネルギーを吸収します。それにより、内部で励起あるいは、電離が起き、この吸収したエネルギーの一部が可視光や紫外線として発せられます。これらの発光を、冷却 CCD カメラを使い撮像し、解析します。

８． 結果、解析

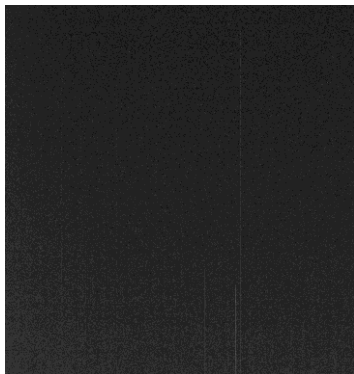
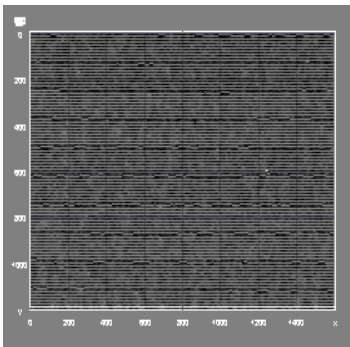
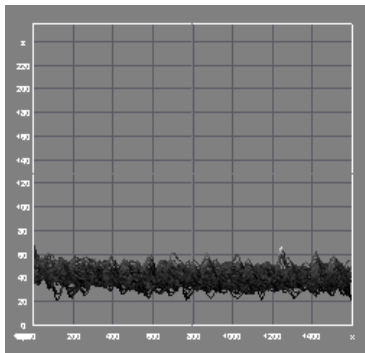
CCD カメラの backgrand

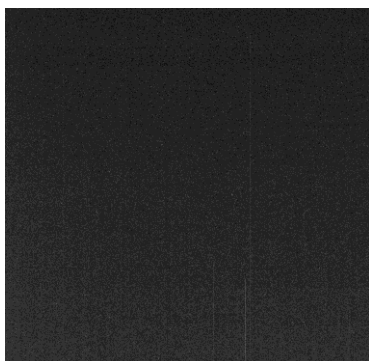
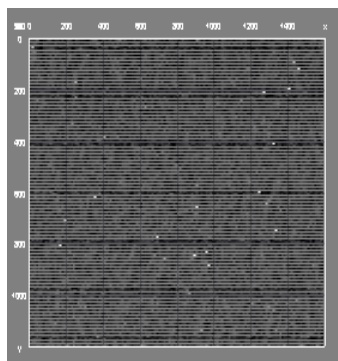
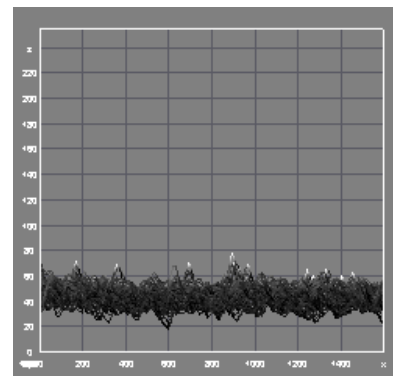
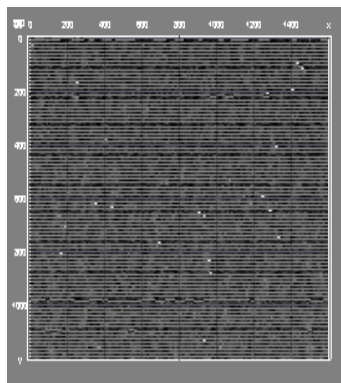
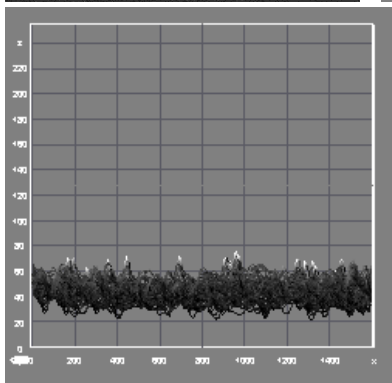
1. CCD カメラの画像

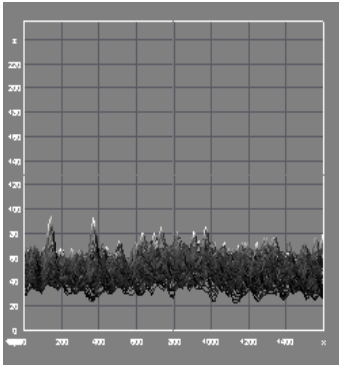
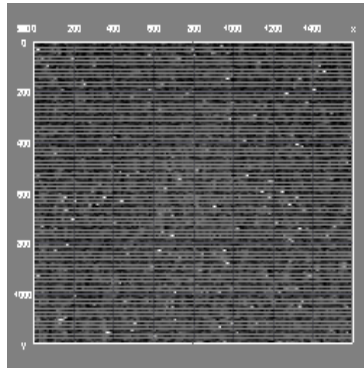
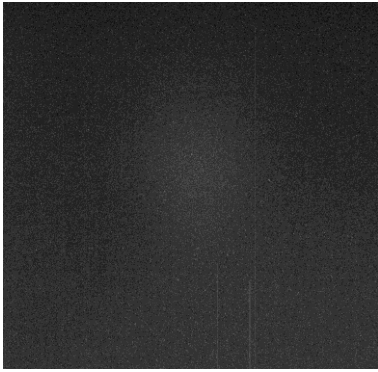
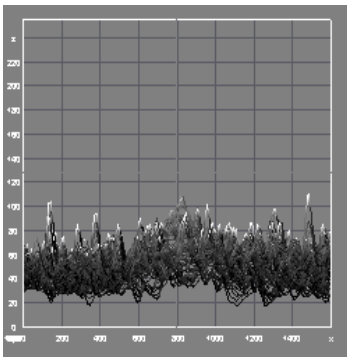
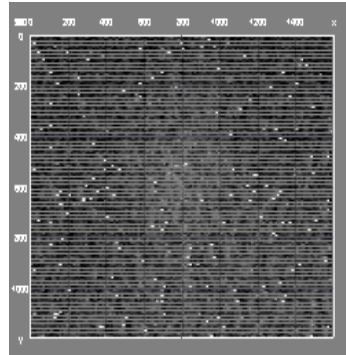
2. imageJ の解析画像で画像全体を上から見たもの

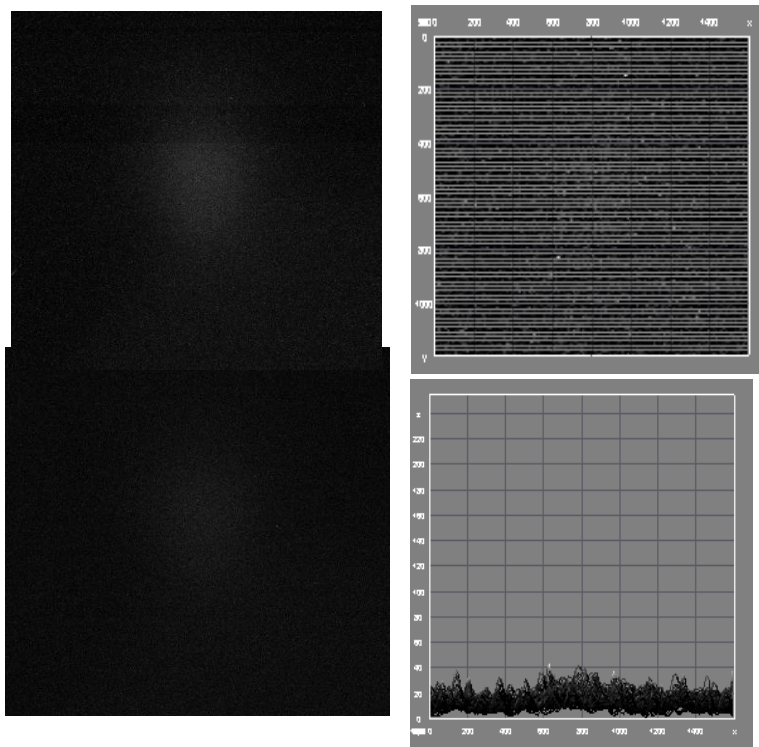
3. imageJ の解析画像で画像全体を横から見たもの

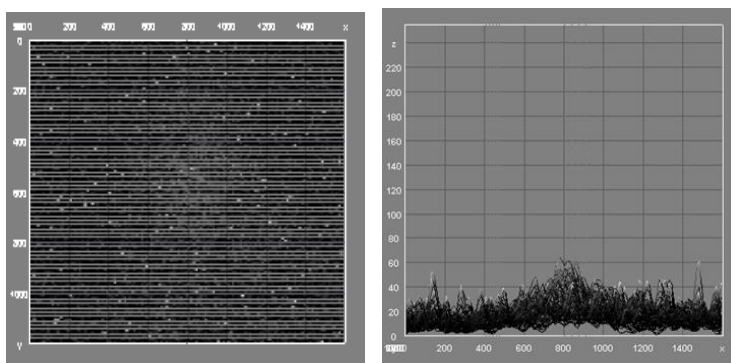
１s の backgrand

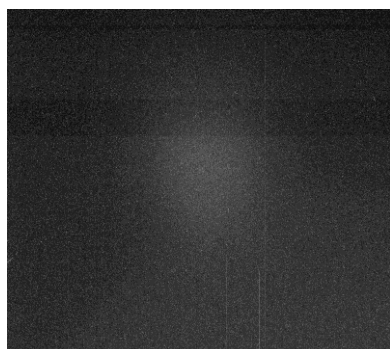
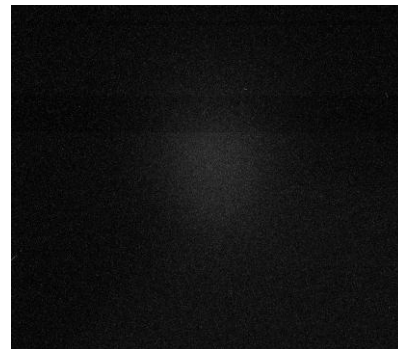
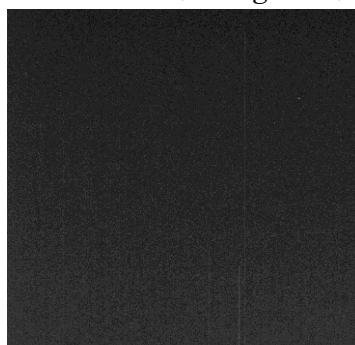
1.　　　　　　　　　　2.　　　　　　　　　　3.

300s の backgrand

1.　　　　　　　　　　2.　　　　　　　　　　3.

600s の backgrand

1. 2. 3.

セシウム 137 をシンチレータに当てた画像

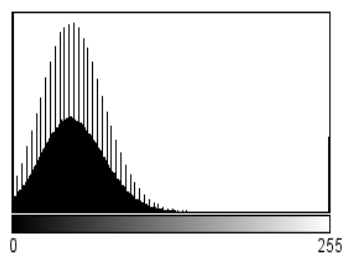
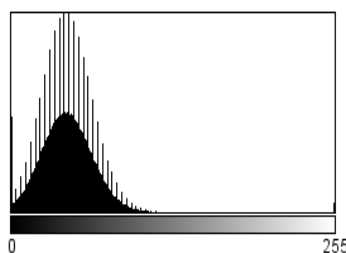
1800s

3600s

ここからは、セシウム137をシンチレータに当てた画像より、backgrandを引き解析します。Backgrandは、600s測定したものを使います。

1800s－backgrand

3600s－backgrand

Backgrandを引くことにより、ノイズなどの信号を消すことができたので、白い点が少なくなりました。

前のページで説明した画像から backgrand を差し引いた画像を、imageJ の histogram で解析すると次のようになります。左の図から、
1.セシウム 137 をシンチレータに当てた 3600s 撮影した画像
2.backgrand を 600s 撮影した画像
3.1 と 2 の画像を引いた画像

１.3600s　　　　　　　　２.600s(backgrand)

３.3600s－backgrand

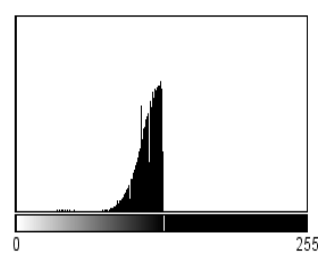
それぞれの画像の histogram

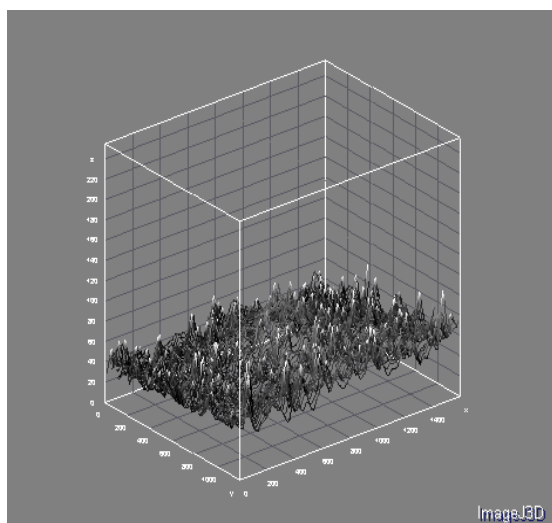
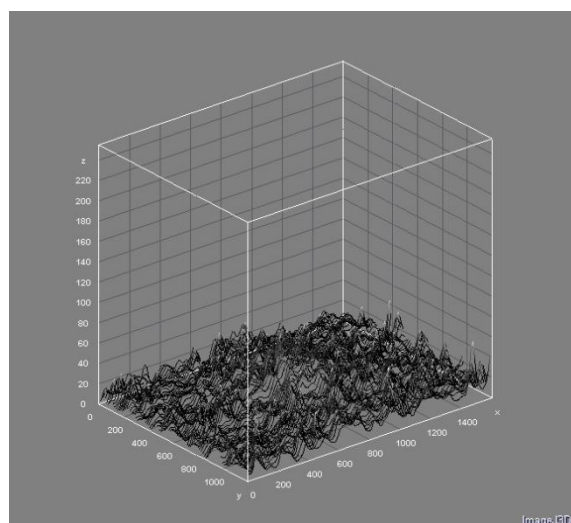
1.

0　255
Count: 1920000　Min: 0
Mean: 51.883　Max: 255
StdDev: 33.988　Mode: 0 (49496)

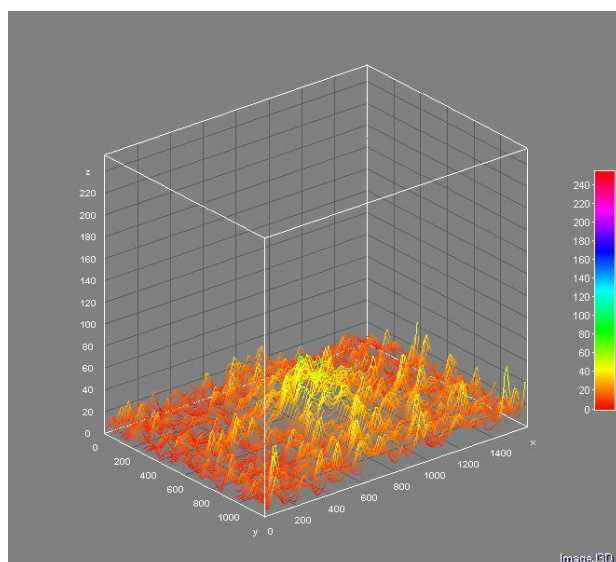
2.

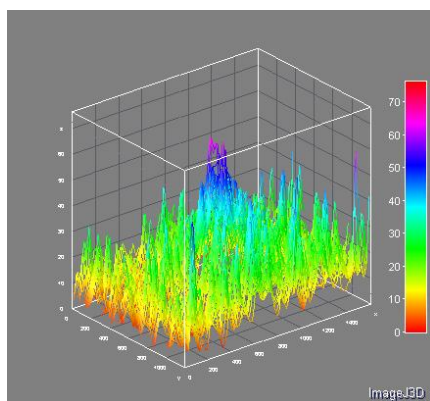
0　255
Count: 1920000　Min: 0
Mean: 44.571　Max: 255
StdDev: 22.593　Mode: 41 (60402)

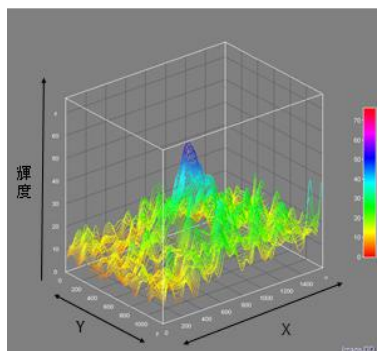
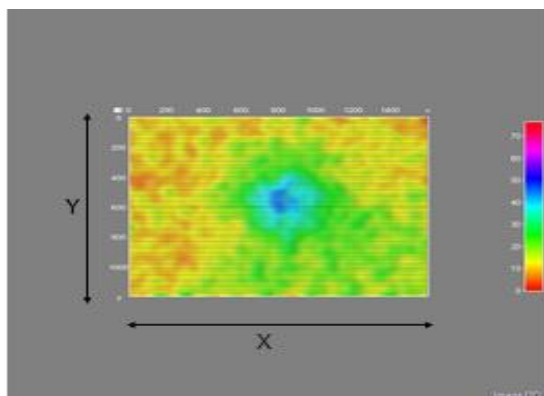
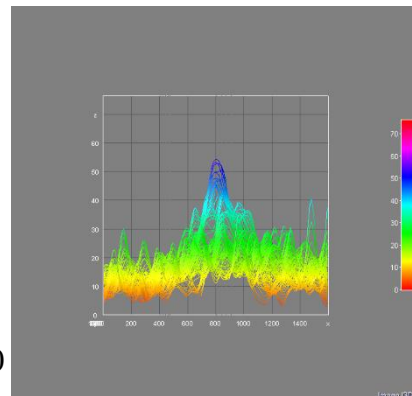
3.

0　255
Count: 1920000　Min: 0
Mean: 64.137　Max: 129
StdDev: 57.610　Mode: 0 (841670)

Histgram を見てみると、1 と 2 の画像では、backgrand の影響により、グラフの中に多くの縦線が入っていますが、3.の結果では、backgrand の影響をなくすことができました。

さらに、backgrand を引いた画像を 3D 画像にして、解析します。

1. Backgrand 引く前の図　　　　　　　　　2.backgrand を引いた図

1.2 の図を見てわかるように、1 の図は、backgrand の影響を受けています。

2 の画像で、セシウム 137 から出る放射線がシンチレータに当たり内部で本当に発行しているのかをわかりやすくするために、imajeJ より、2 の図のデータに色を付けそれぞれのデータのパラメータを変えます。まずは、2 のデータに色を加えます。
ここでの色は、輝度の割り合をあらわしていて、imajeJ が 8bit=256 階調であるから、この色も 256 個のデータを色で表していることになります。

←256 個のデータが、スペクトルで表されています。

セシウムを当てている中心部分が黄色く一番輝度が高くなっています。
次に、色に対する輝度のデータの個数を変化させ、全体図を膨らませます。
これが、色に対する輝度のデータの個数を変化させたものです。前の図では、この色を256個のデータで表していましたが、この図では、256→約75個にすることにより、それぞれのデータのMAXをあげています。

そして、光が当たっている部分を見やすくするために、図を滑らかにします。

上の画像をImageJより滑らかにした図

上から見た図

横から見た図

画像解析を行った結果、中心部分の輝度が上がっている点で、放射線がシンチレックスに入射して発光したことを確認することができた。

９．結論

１．この装置を使うと、2 次元で放射線の位置を撮像できることがわかった。
２．今後、大気蛍光を 2 次元で測定するためには、300～400nm に感度のある CCD を用いて撮像する必要があることがわかった。

１０．参考文献

冷却 CCD カメラ(st-2000xm) ハードウェア取扱説明書
パワーメーター　VEGA　マニュアル
画像処理ソフト ImageJ　日本語マニュアル

１１．謝辞

本研究を進めるにあたり、ご指導を頂いた卒業論文指導教員の梶野教授、山本常夏准教授に感謝致します。また、日常の議論を通じて多くの知識や示唆を頂いた宇宙粒子研究室の皆様に感謝します。ありがとうございました。